

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/006129

International filing date: 30 March 2005 (30.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-226431
Filing date: 03 August 2004 (03.08.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 16 June 2005 (16.06.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

23.5.2005

日本特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2004年 8月 3日
Date of Application:

出願番号 特願 2004-226431
Application Number:

パリ条約による外国への出願
に用いる優先権の主張の基礎
となる出願の国コードと出願
番号
The country code and number
of your priority application,
to be used for filing abroad
under the Paris Convention, is

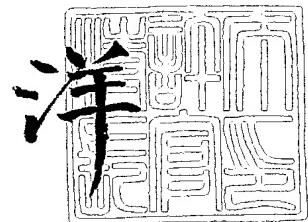
J P 2004-226431

出願人 旭化成ケミカルズ株式会社
Applicant(s):

2005年 5月 16日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



出証番号 出証特 2005-3042305

【書類名】 特許願
【整理番号】 X1040788
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 C08L 63/00
【発明者】
【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区夜光1丁目3番1号 旭化成ケミカルズ株式会社内
【氏名】 山本 久尚
【発明者】
【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区夜光1丁目3番1号 旭化成ケミカルズ株式会社内
【氏名】 大海 一洋
【特許出願人】
【識別番号】 303046314
【氏名又は名称】 旭化成ケミカルズ株式会社
【代表者】 藤原 健嗣
【代理人】
【識別番号】 100108693
【弁理士】
【氏名又は名称】 鳴井 義夫
【電話番号】 03-3591-0848
【連絡先】 担当
【選任した代理人】
【識別番号】 100068238
【弁理士】
【氏名又は名称】 清水 猛
【選任した代理人】
【識別番号】 100095902
【弁理士】
【氏名又は名称】 伊藤 穂
【選任した代理人】
【識別番号】 100103436
【弁理士】
【氏名又は名称】 武井 英夫
【手数料の表示】
【予納台帳番号】 048596
【納付金額】 16,000円
【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 要約書 1
【包括委任状番号】 0314303

【書類名】特許請求の範囲**【請求項1】**

(A) エポキシ樹脂硬化剤からなるコア (a-1) の表面を合成樹脂または無機酸化物からなるシェル (a-2) によって被覆されている構造を持つマイクロカプセル型硬化剤が、マイクロカプセル型硬化剤100重量部に対して10～50000重量部の(B) エポキシ樹脂に分散されているエポキシ樹脂組成物において、溶解度パラメーターが8.900～12.00であり、硬化後の架橋間分子量が105～150である高溶解性エポキシ樹脂を(B) エポキシ樹脂に対して0.1重量%以上含み、該組成物の全塩素量が2000ppm以下であることを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

【請求項2】

高溶解性エポキシ樹脂のジオール末端不純成分が、高溶解性エポキシ樹脂基本構造成分の0.001～30%に相当することを特徴とする請求項1に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項3】

(B) エポキシ樹脂の全塩素量が2000ppm以下であることを特徴とする請求項1又は請求項2に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項4】

(A) マイクロカプセル型硬化剤が、コア (a-1) が1分子中に少なくとも1個の3級アミノ基を有するが1級および2級アミノ基を有さず、波数1630～1680cm⁻¹の赤外線を吸収する結合基(x)と波数1680～1725cm⁻¹の赤外線を吸収する結合基(y)を少なくとも表面に有するアミン系化合物であり、シェル (a-2) が上記アミン系化合物(a-1)とエポキシ樹脂の反応生成物からなるとからなることを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項5】

(B) エポキシ樹脂100重量部に対し酸無水物類、フェノール類、ヒドラジド類、およびグアニジン類よりなる群より選ばれる少なくとも1種の硬化剤を0.1～10000重量部を含有することを特徴とする請求項1～4のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項6】

請求項1～5のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物を含有することを特徴とする異方導電性材料。

【請求項7】

請求項1～5のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物を含有することを特徴とする接合用フィルム。

【請求項8】

請求項1～5のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物を含有することを特徴とする半導体接合用ペースト。

【請求項9】

請求項1～5のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物を含有することを特徴とする構造用接着剤。

【書類名】明細書

【発明の名称】高反応性カプセル型硬化剤含有エポキシ樹脂組成物

【技術分野】

【0001】

本発明は新規なエポキシ樹脂組成物に関する。さらに詳しくは、低温硬化性と貯蔵安定性が共に優れ、かつエポキシ樹脂との配合が容易であり、また、良好な硬化物特性を与える潜在硬化性を有するエポキシ樹脂組成物およびそれを用いたエポキシ樹脂系材料に関する。

【背景技術】

【0002】

エポキシ樹脂は、その硬化物が、機械的特性、電気的特性、熱的特性、耐薬品性、接着性等の点で優れた性能を有することから、塗料、電気電子用絶縁材料、接着剤等の幅広い用途に利用されている。現在一般に使用されているエポキシ樹脂組成物は、使用時にエポキシ樹脂と硬化剤の二液を混合する、いわゆる二液性のものである。

二液性エポキシ樹脂組成物は室温で硬化しうる反面、エポキシ樹脂と硬化剤を別々に保管し、必要に応じて両者を計量、混合した後、使用する必要があるため、保管や取り扱いが煩雑である。

その上、可使用時間が限られているため、予め大量に混合しておくことができず、配合頻度が多くなり、能率の低下を免れない。

こうした二液性エポキシ樹脂配合品の問題を解決する目的で、これまでいくつかの一液性エポキシ樹脂組成物が提案されてきている。例えば、ジシアンジアミド、BF3-アミン錯体、アミン塩、変性イミダゾール化合物等の潜在性硬化剤をエポキシ樹脂に配合したものがある。

【0003】

しかし、これらの潜在性硬化剤は、貯蔵安定性に優れているものは、硬化温度が高く、一方、低温で硬化するものは貯蔵安定性が低く、例えば-20℃等の低温で貯蔵する必要がある。例えば、ジシアンジアミドは、配合品の貯蔵安定性は、常温保存の場合に6ヶ月以上であるが、170℃以上の硬化温度が必要であり、この硬化温度を低下させるために、硬化促進剤を併用すると、例えば130℃での硬化が可能であるが、一方、室温での貯蔵安定性が不十分であり、低温での貯蔵を余儀なくされる。従って、低温硬化性と貯蔵安定性が共に優れる組成物を与える硬化剤が強く求められている。

【0004】

その要求に対し、アミン系硬化剤のコアを特定のシェルで被覆した所謂マイクロカプセル型の硬化剤が提案され、低温硬化性と貯蔵安定性の両立に関して一定の成果を上げている。例えば、特開平1-70523号公報では、特定のアミン系硬化剤をコアとし、上記アミン化合物とエポキシ樹脂の反応生成物をシェルとしてなる硬化剤と、エポキシ樹脂とからなる一液性エポキシ樹脂組成物用マスター・バッチ型硬化剤が開示されている。

しかし近年、特に電子機器分野において、回路の高密度化や接続信頼性の向上に対応するため、またモバイル機器の軽量化として耐熱性の低い材料を使用するために、あるいは生産性を大幅に改善する目的で、接続材料の一つとして用いられる一液性エポキシ樹脂組成物に対して、貯蔵安定性を損なわずに、硬化性の一層の向上が強く求められ、従来技術ではその達成は困難であった。

【0005】

【特許文献1】特開平1-70523号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明は、硬化性、特に低温硬化性と貯蔵安定性を両立し得る一液性エポキシ樹脂組成物、そして、貯蔵安定性が高く、低温あるいは短時間の硬化条件であっても、高い接続信頼性、接着強度、高い封止性が得られる異方導電性材料、導電接着材料、絶縁接着材料、

封止材料、構造接着剤等を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、特定のエポキシ樹脂を使用することによって、上記課題を解決することを見出した。

すなわち、本発明は

1) (A) エポキシ樹脂硬化剤からなるコア (a-1) の表面を合成樹脂または無機酸化物からなるシェル (a-2) によって被覆されている構造を持つマイクロカプセル型硬化剤が、マイクロカプセル型硬化剤 100 重量部に対して 10~50000 重量部の (B) エポキシ樹脂に分散されているエポキシ樹脂組成物において、溶解度パラメーターが 8.900~12.00 であり、硬化後の架橋間分子量が 105~150 である高溶解性エポキシ樹脂を (B) エポキシ樹脂に対して 0.1 重量%以上含み、該組成物の全塩素量が 2000 ppm 以下であることを特徴とするエポキシ樹脂組成物、

2) 高溶解性エポキシ樹脂のジオール末端不純成分が、高溶解性エポキシ樹脂基本構造成分の 0.001~30% に相当することを特徴とする 1) 記載のエポキシ樹脂組成物、

3) (B) エポキシ樹脂の全塩素量が 2000 ppm 以下である 1) 又は 2) 記載のエポキシ樹脂組成物、

【0008】

4) (A) マイクロカプセル型硬化剤が、コア (a-1) が 1 分子中に少なくとも 1 個の 3 級アミノ基を有するが 1 級および 2 級アミノ基を有さず、波数 1630~1680 cm⁻¹ の赤外線を吸収する結合基 (x) と波数 1680~1725 cm⁻¹ の赤外線を吸収する結合基 (y) を少なくとも表面に有するアミン系化合物であり、シェル (a-2) が上記アミン系化合物 (a-1) とエポキシ樹脂の反応生成物からなるとからなることを特徴とする 1) ~ 3) のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物、

5) (B) エポキシ樹脂 100 重量部に対し酸無水物類、フェノール類、ヒドラジド類、およびグアニジン類よりなる群より選ばれる少なくとも 1 種の硬化剤を 0.1~10 000 重量部を含有することを特徴とする 1) ~ 4) のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物、また、

6) 1) ~ 5) のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物を含有することを特徴とする異方導電性材料、

【0009】

7) 1) ~ 5) のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物を含有することを特徴とする接合用フィルム、

8) 1) ~ 5) のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物を含有することを特徴とする半導体接合用ペースト、

9) 1) ~ 5) のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物を含有することを特徴とする構造用接着剤、

である。

【発明の効果】

【0010】

本発明のエポキシ樹脂組成物は、高い硬化性と貯蔵安定性の両立に効果を有するとともに、その硬化物が信頼性、耐水性、接着性、電気的特性に優れた特性を発現する。

【発明を実施するための最良の形態】

【0011】

本発明について、以下具体的に説明する。

本発明を構成するマイクロカプセル型硬化剤は、エポキシ樹脂硬化剤からなるコア (a-1) の表面を (a-1) とは成分の異なるシェル (a-2) によって被覆されている構造を持つものである。

エポキシ樹脂硬化剤からなるコア (a-1) としてはトリフェニルホスフィン等の磷系硬化剤、フェノールノボラック、置換または無置換のトリヒドロキシベンゼン、置換または

は無置換のビスフェノール類などのフェノール系硬化剤、アミンアダクト、マンニッヒベース硬化剤などのアミン系硬化剤等が挙げられるが、エポキシ樹脂との反応性が優れてい るという観点から、アミン系硬化剤が好ましい。

本発明の(a-1)成分として用いることのできるアミン系硬化剤としては、低分子アミン化合物とアミンアダクトが挙げられる。これらは併用することができる。

低分子アミン化合物としては、一級、二級およびまたは三級アミノ基を有する低分子化合物が挙げられる。

【0012】

一級アミノ基を有する低分子化合物としては、エチレンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ヘキサメチレンジアミン、イソホロンジアミン、ビス(4-アミノ-3-メチルシクロヘキシル)メタン、ジアミノジシクロヘキシルメタン、メタキシレンジアミン、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン、メタフェニレンジアミン等の一級アミン類、ジシアンジアミド、メチルグアニジン、エチルグアニジン、プロピルグアニジン、ブチルグアニジン、ジメチルグアニジン、トリメチルグアニジン、フェニルグアニジン、ジフェニルグアニジン、トルイルグアニジン等のグアニジン類、コハク酸ジヒドラジド、アジピン酸ジヒドラジド、フタル酸ジヒドラジド、イソフタル酸ジヒドラジド、テレフタル酸ジヒドラジド、p-オキシ安息香酸ヒドラジド、サリチル酸ヒドラジド、フェニルアミノプロピオン酸ヒドラジド、マレイン酸ジヒドラジド等の酸ヒドラジド類が例示される。

【0013】

二級アミノ基を有する低分子化合物としては、ピペリジン、ピロリジン、ジフェニルアミン、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール等が例示される。

三級アミノ基を有する低分子化合物としては、1-シアノエチル-2-ウンデシル-1-イミダゾールトリメリテート、イミダゾリルコハク酸、2-メチルイミダゾールコハク酸、2-エチルイミダゾールコハク酸、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール等のイミダゾール類や、ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、2, 4, 6-トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール、N, N'-ジメチルピペラジン、トリエチレンジアミン、1, 8-ジアザビシクロ(5, 4, 0)-ウンデセン-7, 1, 5-ジアザビシクロ(4, 3, 0)-ノネン-5、ピリジン、ピコリン等が例示される。

【0014】

アミンアダクトは、カルボン酸化合物、スルホン酸化合物、イソシアネート化合物、尿素化合物およびエポキシ樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1種の化合物と前記低分子アミン化合物とを反応して得られるアミノ基を有する化合物である。

アミンアダクトの原料として用いられる、カルボン酸化合物、スルホン酸化合物、イソシアネート化合物、尿素化合物およびエポキシ樹脂を下記に示す。

アミンアダクトの原料として用いられるカルボン酸化合物としては、例えば、コハク酸、アジピン酸、セバシン酸、フタル酸、ダイマー酸等が挙げられる。

アミンアダクトの原料として用いられるスルホン酸化合物としては、例えば、エタンスルホン酸、p-トルエンスルホン酸等が挙げられる。

【0015】

アミンアダクトの原料として用いられるイソシアネート化合物としては、例えば、脂肪族ジイソシアネート、脂環式ジイソシアネート、芳香族ジイソシアネート、脂肪族トリイソシアネート、ポリイソシアネートを挙げることができる。脂肪族ジイソシアネートの例としては、エチレンジイソシアネート、プロピレンジイソシアネート、ブチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート等を挙げることができる。脂環式ジイソシアネートの例としては、イソホロンジイソシアネート、4-4'-ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、ノルボルナンジイソシアネート、1, 4-イソシアナトシクロヘキサン、1, 3-ビス(イソシアナトメチル)アミン、1, 4-イソシアナトシクロヘキサン、1, 3-ビス(2-イソシアナトプロピル-2イル)-シクロヘキサ

ン等を挙げることができる。芳香族ジイソシアネートの例としては、トリレンジイソシアネート、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、キシレンジイソシアネート、1, 5-ナフタレンジイソシアネート等を挙げることができる。脂肪族トリイソシアネートの例としては、1, 3, 6-トリイソシアネートメチルヘキサン、2, 6-ジイソシアナトヘキサン酸-2-イソシアナトエチル等を挙げることができる。ポリイソシアネートとしては、ポリメチレンポリフェニルポリイソシアネートや上記ジイソシアネート化合物より誘導されるポリイソシアネートが例示される。上記ジイソシアネートより誘導されるポリイソシアネートとしては、イソシアヌレート型ポリイソシアネート、ビュレット型ポリイソシアネート、ウレタン型ポリイソシアネート、アロハネート型ポリイソシアネート、カルボジイミド型ポリイソシアネート等がある。

【0016】

アミンアダクトの原料として用いられる尿素化合物としては、例えば、尿素、メチル尿素、ジメチル尿素、エチル尿素、*t*-ブチル尿素等が挙げられる。

アミンアダクトの原料として用いられるエポキシ樹脂としては、モノエポキシ化合物、多価エポキシ化合物のいずれか又はそれらの混合物が用いられる。モノエポキシ化合物としては、ブチルグリシジルエーテル、ヘキシルグリシジルエーテル、フェニルグリシジルエーテル、アリルグリシジルエーテル、パラ-*t*er-t-ブチルフェニルグリシジルエーテル、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、パラキシリルグリシジルエーテル、グリシジルアセテート、グリシジルブチレート、グリシジルヘキソエート、グリシジルベンゾエート等を挙げができる。

【0017】

多価エポキシ化合物としては、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールAD、ビスフェノールS、テトラメチルビスフェノールA、テトラメチルビスフェノールF、テトラメチルビスフェノールAD、テトラメチルビスフェノールS、テトラブロモビスフェノールA、テトラクロロビスフェノールA、テトラフルオロビスフェノールA等のビスフェノール類をグリシジル化したビスフェノール型エポキシ樹脂；ビフェノール、ジヒドロキシナフタレン、9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン等のその他の2価フェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂；1, 1, 1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、4, 4-(1-(4-(1-(4-ヒドロキシフェニル)-1-メチルエチル)フェニル)エチリデン)ビスフェノール等のトリスフェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂；1, 1, 2, 2, -テトラキス(4-ヒドロキシフェニル)エタン等のテトラキスフェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂；フェノールノボラック、クレゾールノボラック、ビスフェノールAノボラック、臭素化フェノールノボラック、臭素化ビスフェノールAノボラック等のノボラック類をグリシジル化したノボラック型エポキシ樹脂等；多価フェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂、グリセリンやポリエチレングリコール等の多価アルコールをグリシジル化した脂肪族エーテル型エポキシ樹脂； α -オキシ安息香酸、 β -オキシナフトエ酸等のヒドロキシカルボン酸をグリシジル化したエーテルエステル型エポキシ樹脂；タル酸、テレタル酸のようなポリカルボン酸をグリシジル化したエステル型エポキシ樹脂；4, 4-ジアミノジフェニルメタンやm-アミノフェノール等のアミン化合物のグリシジル化物やトリグリシジルイソシアヌレート等のアミン型エポキシ樹脂等のグリシジル型エポキシ樹脂と、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル-3', 4' -エポキシシクロヘキサンカルボキシレート等の脂環族エポキサイド等が例示される。

【0018】

アミンアダクトの原料として用いられるエポキシ樹脂としては、エポキシ樹脂組成物の貯蔵安定性を高めることができるので、多価エポキシ化合物が好ましい。多価エポキシ化合物としては、アミンアダクトの反応性が圧倒的に高いので、グリシジル型エポキシ樹脂が好ましく、より好ましくは、硬化物の接着性や耐熱性が優れるため多価フェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂であり、更に好ましくはビスフェノール型エポキシ樹脂である。ビスフェノールAをグリシジル化したエポキシ樹脂とビスフェノールFをグリシジ

ル化したエポキシ樹脂が一層好ましい。ビスフェノールAをグリシジル化したエポキシ樹脂が更に一層好ましい。

【0019】

また、アミンアダクトの原料として用いられるエポキシ樹脂の全塩素量は、本発明のエポキシ樹脂組成物を電気電子分野での用途、例えば半導体装置用封止材等に使用したときの硬化物の電気的信頼性が優れるためには2000 ppm以下が好ましい。

より好ましくは1000 ppm以下であり、より好ましくは500 ppm以下であり、より好ましくは300 ppm以下であり、より好ましくは200 ppm以下であり、より好ましくは100 ppm以下であり、より好ましくは80 ppm以下であり、さらに好ましくは50 ppm以下である。また、シェル形成反応のコントロールを容易にするためには全塩素量は、0.01 ppm以上が好ましい。より好ましくは0.02 ppm以上であり、より好ましくは0.05 ppm以上であり、より好ましくは0.1 ppm以上であり、より好ましくは0.2 ppm以上であり、さらに好ましくは0.5 ppm以上である。たとえば、全塩素量の好ましい範囲は0.1 ppm以上200 ppm以下であり、より好ましい範囲は0.2 ppm以上80 ppm以下であり、より好ましい範囲は0.5 ppm以上50 ppm以下である。

全塩素の内、1、2-クロロヒドリン基に含まれる塩素は一般に加水分解性塩素と呼ばれるが、また、アミンアダクトの原料として用いられるエポキシ樹脂中の加水分解性塩素量は、好ましくは50 ppm以下、より好ましくは0.01~20 ppm、更に好ましくは0.05~10 ppmである。加水分解性塩素量が50 ppm以下で、高い硬化性と貯蔵安定性の両立に対し有利であり、優れた電気特性を示し好ましい。

これらエポキシ樹脂は単独で使用しても併用しても良い。

【0020】

アミンアダクトの原料として用いられる、カルボン酸化合物、スルホン酸化合物、インシアネート化合物、尿素化合物およびエポキシ樹脂のうち、エポキシ樹脂が高い硬化性と貯蔵安定性に優れており好ましい。

アミンアダクトの原料として用いられる前記低分子アミン化合物としては貯蔵安定性と硬化性のバランスの点でイミダゾール類が好ましく、中でも2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-メチルイミダゾールが好ましい。

また、本発明のコア(a-1)成分としてアミン系硬化剤を使用する場合は、波数1630~1680 cm⁻¹の赤外線を吸収する結合基(x)と波数1680~1725 cm⁻¹の赤外線を吸収する結合基(y)を少なくともその表面に有するものが、貯蔵安定性と反応性のバランスの観点から好ましい。

結合基(x)と結合基(y)は、フーリエ変換式赤外分光光度計(FT-IRと称す)を用いて測定することができる。また、結合基(x)およびまたは結合基(y)がアミン系硬化剤(a-1)の少なくとも表面に有することは、顕微FT-IRを用いて測定することができる。

結合基(x)のうち、特に有用なものとして、ウレア結合を挙げることができる。結合基(y)のうち、特に有用なものとして、ビュレット結合を挙げることができる。

【0021】

このウレア結合、ビュレット結合はイソシアネート化合物と水または1分子中に1個以上の1級アミノ基を有するアミン化合物との反応により生成される。結合基(x)の代表であるウレア結合、及び結合基(y)の代表であるビュレット結合を生成するために用いられるイソシアネート化合物としては、1分子中に1個以上のイソシアネート基を有する化合物であればよいが、好ましくは1分子中に2個以上のイソシアネート基を有する化合物を用いることである。代表的なイソシアネート化合物としては、脂肪族ジイソシアネート、脂環式ジイソシアネート、芳香族ジイソシアネート、低分子トリイソシアネート、ポリイソシアネートを挙げることができる。脂肪族ジイソシアネートの例としては、エチレンジイソシアネート、プロピレンジイソシアネート、ブチレンジイソシアネート、ヘキサンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート等を挙げること

ができる。脂環式ジイソシアネートの例としては、イソホロンジイソシアネート、4-4'，-ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、ノルボルナンジイソシアネート、1, 4-イソシアナトシクロヘキサン、1, 3-ビス(イソシアナトメチル)-シクロヘキサン、1, 3-ビス(2-イソシアナトプロピル-2イル)-シクロヘキサン等を挙げることができる。芳香族ジイソシアネートの例としては、トリレンジイソシアネート、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、キシレンジイソシアネート、1, 5-ナフタレンジイソシアネート等を挙げることができる。低分子トリイソシアネートの例としては、1, 6, 11-ウンデカントリイソシアネート、1, 8-ジイソシアネート-4-イソシアネートメチルオクタン、1, 3, 6-ヘキサメチレントリイソシアネート、2, 6-ジイソシアナトヘキサン酸-2-イソシアナトエチル、2, 6-ジイソシアナトヘキサン酸-1-メチル-2-イソシアネートエチル等の脂肪族トリイソシアネート化合物、トリシクロヘキシルメタントリイソシアネート、ビシクロヘプタントリイソシアネート等の脂環式トリイソシアネート化合物、トリフェニルメタントリイソシアネート、トリス(イソシアネートフェニル)チオホスフェート等の芳香族トリイソシアネート化合物等を挙げができる。ポリイソシアネートとしては、ポリメチレンポリフェニルポリイソシアネートや上記ジイソシアネート、低分子トリイソシアネートより誘導されるポリイソシアネートが例示される。上記ジイソシアネート、トリイソシアネートより誘導されるポリイソシアネートとしては、イソシアヌレート型ポリイソシアネート、ビュレット型ポリイソシアネート、ウレタン型ポリイソシアネート、アロハネート型ポリイソシアネート、カルボジイミド型ポリイソシアネート等がある。

【0022】

結合基(x)および(y)の代表であるウレア結合またはビュレット結合を生成させるための1分子中に1個以上の1級アミノ基を有するアミン化合物としては、脂肪族アミン、脂環族アミン、芳香族アミンを使用することができる。脂肪族アミンの例としては、メチルアミン、エチルアミン、プロピルアミン、ブチルアミン等のアルキルアミン；エチレンジアミン、プロピレンジアミン、ブチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、等のアルキレンジアミン；ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン等のポリアルキレンポリアミン等を挙げることができる。脂環式アミンの例としては、シクロプロピルアミン、シクロブチルアミン、シクロペンチルアミン、シクロヘキシルアミン、イソホロンジアミン等を挙げることができる。芳香族アミンとしては、アニリン、トルイジン、ベンジルアミン、ナフチルアミン、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン等を挙げることができる。

【0023】

コア(a-1)表面において、結合基(x)および結合基(y)は、それぞれ1~100mEq/kgおよび1~1000mEq/kgの範囲の濃度を有していることが好ましい。ここで言う濃度はアミン系硬化剤(a-1)に対する値である。結合基(x)の濃度が1mEq/kg以上で、機械的剪断力に対して高い耐性を有するカプセル型硬化剤を得るのに有利である。また、1000mEq/kg以下で、高い硬化性を得るのに有利である。さらに好ましい結合基(x)の濃度範囲は10~300mEq/kgである。

結合基(y)の濃度が1mEq/kg以上で、機械的剪断力に対して高い耐性を有するカプセル型硬化剤を得るのに有利である。また、1000mEq/kg以下で、高い硬化性を得るのに有利である。さらに好ましい結合基(y)の範囲は10~200mEq/kgである。

【0024】

また、コア(a-1)表面は、結合基(x)および結合基(y)の他に、波数が1730~1755cm⁻¹の赤外線を吸収する結合基(z)を有することが好ましい。この結合基(z)のうち、特に有用なものは、ウレタン結合である。このウレタン結合は、イソシアネート化合物と1分子中に1個以上の水酸基を有する化合物との反応により生成される。ここで用いられるイソシアネート化合物としては、ウレア結合、ビュレット結合を生成するため用いられるイソシアネート化合物が使用できる。結合基(z)の代表であるウ

レタン結合を生成するために用いられる1分子中に1個以上の水酸基を有する化合物としては、脂肪族飽和アルコール、脂肪族不飽和アルコール、脂肪式アルコール、芳香族アルコール等のアルコール化合物、フェノール化合物を用いることができる。脂肪族アルコールとしては、メチルアルコール、プロピルアルコール、ブチルアルコール、アミルアルコール、ヘキシルアルコール、ヘプチルアルコール、オクチルアルコール、ノニルアルコール、デシルアルコール、ウンデシルアルコール、ラウリルアルコール、ドテシルアルコール、ステアリルアルコール、エイコシルアルコール等のモノアルコール類；エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノヘキシルエーテル等のエチレングリコールモノアルキルエーテル類；エチレングリコール、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、ポリプロピレングリコール、1, 3-ブタジオール、ネオペンチルグリコール等の二価アルコール類；グリセリン、トリメチロール、プロパン等の三価アルコール類；ペンタエリスリトール等の四価アルコール類を挙げることができる。脂肪族不飽和アルコールとしては、アリルアルコール、クロチルアルコール、プロパルギルアルコール等を挙げることができる。脂環式アルコールとしては、シクロペンタノール、シクロヘキサンノール、シクロヘキサンジメタノール等を挙げることができる。芳香族アルコールとしては、ベンジルアルコール、シンナミルアルコール等のモノアルコール類を挙げることができ。これらのアルコールにおいては、第一、第二、または第三アルコールのいずれでもよい。また、1分子中に1個以上のエポキシ基を有する化合物と、1分子中に1個以上の水酸基、カルボキシル基、1級または2級アミノ基、メルカプト基を有する化合物との反応により得られる2級水酸基を1分子中に1個以上有する化合物もアルコール化合物として用いることができる。フェノール化合物としては、石炭酸、クレゾール、キシレノール、カルバクロール、モチール、ナフトール等の一価フェノール、カテコール、レゾルシン、ヒドロキノン、ビスフェノールA、ビスフェノールF等の二価フェノール、ピロガロール、フロロゲルシン等の三価フェノールを挙げることができる。これら1分子中に1個以上の水酸基を有する化合物として好ましいのは、二価以上の水酸基を有するアルコール化合物またはフェノール化合物である。

【0025】

コア(a-1)表面の結合基(z)の好ましい濃度範囲は、1～200 meq/kgである。ここで言う濃度はアミン系硬化剤(A)に対する値である。結合基(z)の濃度が1 meq/kg以上で、機械的剪断力に対して高い耐性を有するシェルを形成するのに有利であり、200 meq/kg以下で、高い硬化性を得るのに有利である。さらに好ましい結合基(z)の濃度範囲は、5～100 meq/kgである。結合基(x)、結合基(y)および結合基(z)の濃度の定量は、特許文献1に開示された方法で行なうことができる。

コア(a-1)表面の結合基(z)の存在域の合計厚みは、平均層厚で5～1000 nmが好ましい。5 nm以上で貯蔵安定性が得られ、1000 nm以下で、実用的な硬化性が得られる。ここでいう層の厚みは、透過型電子顕微鏡により測定することができる。特に好ましいコア(a-1)表面の結合基の合計厚みは、平均層厚で10～100 nmである。

コア(a-1)に対する該表面の結合基の比は、質量比で100/1～100/100である。この範囲において貯蔵安定性と硬化性が両立する。好ましくは100/2～100/80、より好ましくは100/5～100/60、一層好ましくは100/10～100/50である。

【0026】

アミン系硬化剤の表面に結合基を存在させる方法としては、結合基の成分を溶解し、アミン系硬化剤を分散させた分散媒中で、結合基の成分の溶解度を下げて、アミン系硬化剤の表面に析出させる方法、アミン系硬化剤を分散させた分散媒中で、結合基の形成反応を行い、アミン系硬化剤の表面に結合基を析出させる、あるいはアミン系硬化剤の表面を反応の場として、そこで結合基を生成させる方法等が挙げられる。後者の方法が反応と被覆

を同時に用なうことができ好ましい。

ここで分散媒としては、溶媒、可塑剤等が例示される。また、エポキシ樹脂を分散媒として用いることもできる。

溶媒としては、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン、シクロヘキサン、ミネラルスピリット、ナフサ等の炭化水素類；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類；酢酸エチル、酢酸-n-ブチル、プロピレングリコールモノメチルエチルエーテルアセテート等のエステル類；メタノール、イソプロパノール、n-ブタノール、ブチルセロソルブ、ブチルカルビトール等のアルコール類；水、等が例示される。可塑剤としては、フタル酸ジブチル、フタル酸ジ（2-エチルヘキシル）等のフタル酸ジエステル系、アジピン酸ジ（2-エチルヘキシル）等の脂肪族二塩基酸エステル系、リン酸トリクレジル等のリン酸トリエステル系、ポリエチレングリコールエステル等のグリコールエステル系等が例示される。

【0027】

結合基でアミン系硬化剤を被覆する方法において、分散媒として使用できるエポキシ樹脂としては例え、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールAD、ビスフェノールS、テトラメチルビスフェノールA、テトラメチルビスフェノールF、テトラメチルビスフェノールAD、テトラメチルビスフェノールS、テトラブロモビスフェノールA、テトラクロロビスフェノールA、テトラフルオロビスフェノールA等のビスフェノール類をグリシジル化したビスフェノール型エポキシ樹脂；ビフェノール、ジヒドロキシナフタレン、ジヒドロキシベンゼン、9,9-ビス（4-ヒドロキシフェニル）フルオレン等のその他の2価フェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂；1,1,1-トリス（4-ヒドロキシフェニル）メタン、4,4-（1-（4-（1-（4-ヒドロキシフェニル）-1-メチルエチル）フェニル）エチリデン）ビスフェノール等のトリスフェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂；1,1,2,2,-テトラキス（4-ヒドロキシフェニル）エタン等のテトラキスフェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂；フェノールノボラック、クレゾールノボラック、ビスフェノールAノボラック、臭素化フェノールノボラック、臭素化ビスフェノールAノボラック等のノボラック類をグリシジル化したノボラック型エポキシ樹脂等；多価フェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂、グリセリンやポリエチレングリコール等の多価アルコールをグリシジル化した脂肪族エーテル型エポキシ樹脂；p-オキシ安息香酸、β-オキシナフトエ酸等のヒドロキカルボン酸をグリシジル化したエーテルエステル型エポキシ樹脂；フタル酸、テレフタル酸のようなポリカルボン酸をグリシジル化したエステル型エポキシ樹脂；4,4-ジアミノジフェニルメタンやm-アミノフェノール等のアミン化合物のグリシジル化物やトリグリシジルイソシアヌレート等のアミン型エポキシ樹脂等のグリシジル型エポキシ樹脂と、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3',4'-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート等の脂環族エポキサイド等が例示される。

【0028】

それらの中で、エポキシ樹脂組成物の貯蔵安定性が高いので、グリシジル型エポキシ樹脂が好ましく、より好ましくは、硬化物の接着性や耐熱性が優れるため多価フェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂であり、更に好ましくはビスフェノール型エポキシ樹脂である。ビスフェノールAをグリシジル化したエポキシ樹脂とビスフェノールFをグリシジル化したエポキシ樹脂が一層好ましい。ビスフェノールAをグリシジル化したエポキシ樹脂が更に一層好ましい。

【0029】

本発明の（a-1）成分として用いることのできるコア（a-1）の形態としては液状、塊状、顆粒状、粉末状、などが挙げられるが、好ましくは顆粒状または粉末状であり、さらに好ましくは粉末状である。本願において粉末状とは、特別に制限するものではないが、0.1～50μmの平均粒径が好ましく、さらに好ましくは0.5～10μmの平均粒径である。50μm以下にすることで、均質な硬化物を得ることができる。本発明でいう粒径とは、光散乱法で測定されるストークス径を指すものである。また平均粒径は、メ

ディアン径を指すものである。また、その形状は特に制限は無く、球状、不定形いずれでも良く、マスター・バッチあるいはエポキシ樹脂組成物の低粘度化のためには、球状が好ましい。ここで球状とは、真球は勿論の事、不定形の角が丸みを帯びた形状をも包含する。

【0030】

また、本発明を構成するマイクロカプセル型硬化剤のシェル（a-2）の成分は合成樹脂または無機酸化物の中から選択される。これらの中でも膜の安定性と加熱時の破壊しやすさ、および硬化物の均一性の観点から、合成樹脂の方が好ましい。

合成樹脂としては、エポキシ樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエチレン樹脂、ナイロン樹脂、ポリスチレン樹脂、ウレタン樹脂などが挙げられ、モノまたは多価アルコールとモノまたは多価イソシアネートの付加生成物であるウレタン系樹脂、アミン系硬化剤とエポキシ樹脂との反応生成物、フェノール樹脂が望ましく、中でも膜の安定性と加熱時の破壊しやすさの観点から、アミン系硬化剤とエポキシ樹脂との反応生成物が好ましい。

無機物の例としては、酸化ホウ素、ほう酸エステル等のホウ素化合物、二酸化珪素、酸化カルシウムが等挙げられ、膜の安定性と加熱時の破壊しやすさの観点から、酸化ホウ素が好ましい。

【0031】

本発明を構成するマイクロカプセル型硬化剤のシェル（a-2）の成分としてアミン系硬化剤とエポキシ樹脂との反応生成物を用いる場合の反応は、通常-10℃～150℃、好ましくは0℃～100℃の温度範囲で、1～168時間、好ましくは2時間～72時間の反応時間で行われ、分散媒中で行なうこともできる。分散媒としては、溶媒、可塑剤等が例示される。また、エポキシ樹脂自体を分散媒として用いることもできる。

溶媒としては、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン、シクロヘキサン、ミネラルスピリット、ナフサ等の炭化水素類、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、酢酸エチル、酢酸-n-ブチル、プロピレンジリコールモノメチルエチルエーテルアセテート等のエステル類、メタノール、イソプロパノール、n-ブタノール、ブチルセロソルブ、ブチルカルビトール等のアルコール類、水、等が例示される。可塑剤としては、フタル酸ジブチル、フタル酸ジ(2-エチルヘキシル)等のフタル酸ジエステル系、アジピン酸ジ(2-エチルヘキシル)等の脂肪族二塩基酸エステル系、リン酸トリクレジル等のリン酸トリエステル系、ポリエチレンジリコールエステル等のグリコールエステル系等が例示される。

【0032】

アミン系硬化剤とエポキシ樹脂とを反応させる時の質量比は、特に制限は無いが通常、1:0.001～1:1000の範囲、好ましくは1:0.01～1:100の範囲で用いられる。

シェルで、コアを被覆する方法としては、シェルを溶解し、コアを分散させた分散媒中で、シェルの溶解度を下げて、コアの表面にシェルを析出させる方法、コアを分散させた分散媒中で、シェルの形成反応を行い、アミン系硬化剤の表面にシェルを析出させる方法、またはコアの表面を反応の場として、そこでシェルを生成させる方法等が挙げられる。後2者の方法が反応と被覆を同時に行なうことができ好ましい。

また、後2者の場合、アミン系硬化剤はコアであるアミン系硬化剤を使用しても構わないし、別途添加しても構わない。

【0033】

また、本発明の(B)エポキシ樹脂に含まれる高溶解性エポキシ樹脂は溶解度パラメーターが8.900～12.00であることを特徴とする。溶解度パラメーターが12.00よりも大きいと、硬化物の耐水性が低下してしまい、8.900よりも小さいとエポキシ樹脂組成物の硬化性が低下してしまう。このような観点からエポキシ樹脂の溶解度パラメーターは好ましくは、8.95～9.5であり、より好ましくは9.00～9.16であり、特に好ましくは、9.05～9.15であり、殊に好ましくは9.10～9.14であることが望ましい。

また、本発明の(B)エポキシ樹脂に含まれる高溶解性エポキシ樹脂の溶解性パラメー

ターは該エポキシ樹脂基本構造中のエポキシ基が末端炭素と酸素分子間の結合が開烈し、末端炭素原子が直接他の分子に結合し、酸素原子が水酸基を形成した構造に対して、表1に示されたパラメーターを下記式(1)に代入することにより計算により求められる。

【0034】

【数1】

数1

$$SP\text{ 値} = \frac{F_i \text{ の合計値}}{\text{分子量}} \quad (1)$$

【0035】

そのような高溶解性エポキシ樹脂の例を挙げると、1, 2-ジヒドロキシベンゼン、1, 3-ジヒドロキシベンゼン、1, 4-ジヒドロキシベンゼン、3-メチル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、4-メチル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、2-メチル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、4-メチル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、2-メチル-1, 4-ジヒドロキシベンゼン、3-エチル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、4-エチル-1, 4-ジヒドロキシベンゼン、2-エチル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、4-エチル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、2-エチル-1, 4-ジヒドロキシベンゼン、3-チル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、2-エチル-1, 4-ジヒドロキシベンゼン、4-エチル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、4-プロピル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、2-プロピル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、4-プロピル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、2-イソプロピル-1, 4-ジヒドロキシベンゼン、3-イソプロピル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、4-イソプロピル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、2-イソプロピル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、4-イソプロピル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、3-ターシャリブチル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、2-イソプロピル-1, 4-ジヒドロキシベンゼン、3-ターシャリブチル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、4-ターシャリブチル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、2-ターシャリブチル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、4-ターシャリブチル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、3-ジヒドロキシベンゼン、2-ターシャリブチル-1, 4-ジヒドロキシベンゼン、3-ブチル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、4-ブチル-1, 2-ジヒドロキシベンゼン、2-ブチル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、4-ブチル-1, 3-ジヒドロキシベンゼン、2-ブチル-1, 4-ジヒドロキシベンゼン、1, 2-ジヒドロキシナフタレン、ゼン、2-ブチル-1, 4-ジヒドロキシベンゼン、1, 2-ジヒドロキシナフタレン、1, 3-ジヒドロキシナフタレン、1, 4-ジヒドロキシナフタレン、1, 6-ジヒドロキシナフタレン、1, 7-ジヒドロキシナフタレン、1, 8-ジヒドロキシナフタレン、2, 6-ジヒドロ2, 3-ジヒドロキシナフタレン、2, 4-ジヒドロキシナフタレン、2, 6-ジヒドロキシナフタレン、2, 7-ジヒドロキシナフタレン、1, 8-ジヒドロキシナフタレンのグリシジル化合物などが例示される。中でも、1, 3-ジヒドロキシベンゼン、2-メチル-1, 4-ジヒドロキシベンゼン、2-ターシャリブチル-1, 4-ジヒドロキシベンゼンなどが好ましい。

【0036】

また、本発明の(B)エポキシ樹脂に含まれる高溶解性エポキシ樹脂のジオール末端不純成分が、高溶解性エポキシ樹脂基本構造成分の0.001~30%に相当することが望ましい。

高溶解性エポキシ樹脂のジオール末端不純成分の高溶解性エポキシ樹脂基本構造成分に対する比率が30%よりも大きいと、硬化物の耐水性が低下することがあり、0.001よりも小さいとエポキシ樹脂組成物の硬化性が低下してしまうことがある。このような観点から高溶解性エポキシ樹脂のジオール末端不純成分の高溶解性エポキシ樹脂基本構造成分に対する比率は好ましくは、0.01~25%であり、より好ましくは0.1%~20%であり、特に好ましくは、1.0%~15%であり、殊に好ましくは10%~14%で

ある。

本発明の（B）エポキシ樹脂に含まれる高溶解性エポキシ樹脂のジオール末端不純成分の高溶解性エポキシ樹脂基本構造成分に対する比率は実施例の項に記載の方法により求められる。

【0037】

また、本発明の（B）エポキシ樹脂に含まれる高溶解性エポキシ樹脂の硬化後の架橋間分子量は105～150であることを特徴とする。架橋間分子量が150よりも大きいと硬化物の耐熱性が低下したり硬化時の硬化収縮が小さいために被着体同士の接着力が不足し、また105より小さいと、硬化物が脆弱になってしまう。このような観点から（B）エポキシ樹脂に含まれる高溶解性エポキシ樹脂の硬化後の架橋間分子量は好ましくは、107～145であり、より好ましくは108～140であり、さらに好ましくは109～130。特に好ましくは110～120である。

【0038】

高溶解性エポキシ樹脂の硬化後の架橋間分子量はエポキシ樹脂の基本構造式の単量体の分子量を基本構造式に含まれるエポキシ基の数で除した値で規定される。

本発明は（B）該エポキシ樹脂をマイクロカプセル型硬化剤100重量部に対して10～50000重量部配合されていること特徴とする。B) エポキシ樹脂が50000よりも多いと、硬化性が低下してしまい、10より小さいとエポキシ樹脂組成物の粘度が高まり多く、作業性が低下する。このような観点から、エポキシ樹脂の配合量はマイクロカプセル型、硬化剤100重量部に対して100～5000であり、より好ましくは130～400であり、特に好ましくは150～300であることが望ましい。

【0039】

また、本発明は溶解度パラメーターが8.900～12.00である高溶解性エポキシ樹脂を（B）エポキシ樹脂に対して0.1重量%以上含むことを特徴とする。

0.1重量%未満の場合は本発明の効果（特に、低温硬化性と貯蔵安定性）が充分發揮されないことがある。また上限値は特に制限されないが、高溶解性エポキシ樹脂の含有量が高まると吸水率が上昇する傾向がある。このような観点から高溶解性エポキシ樹脂の含有率は好ましくは1%～99%、より好ましくは5%～50%、さらに好ましくは10%～40%、特に好ましくは20%～30%である。

【0040】

(B) エポキシ樹脂の全塩素量は、高い硬化性と貯蔵安定性の両立のためには、200ppm以下であることが望ましい。

より好ましくは1000ppm以下であり、より好ましくは500ppm以下であり、より好ましくは300ppm以下であり、より好ましくは200ppm以下であり、より好ましくは100ppm以下であり、より好ましくは80ppm以下であり、さらに好ましくは50ppm以下である。

【0041】

また、シェル形成反応のコントロールを容易にするためには、全塩素量は、0.01ppm以上が好ましい。より好ましくは0.02ppm以上であり、より好ましくは0.05ppm以上であり、より好ましくは0.1ppm以上であり、より好ましくは0.2ppm以上であり、さらに好ましくは0.5ppm以上である。たとえば、全塩素量の好ましい範囲は0.1ppm以上200ppm以下であり、より好ましい範囲は0.2ppm以上80ppm以下であり、より好ましい範囲は0.5ppm以上50ppm以下である。本発明において全塩素量とは、化合物中に含まれる有機塩素及び無機塩素の総量のことであり、化合物に対する質量基準の値である。

本発明のエポキシ樹脂組成物は全塩素量が2000ppm以下であることを特徴とする。全塩素量が低いほど反応性が高まり、また、該エポキシ樹脂組成物を電子材料に使用した場合、信頼性が高いという観点から望ましく、より好ましくは1500ppm、より好ましくは1000ppm以下であり、より好ましくは500ppm以下であり、より好ましくは400ppm、より好ましくは300ppm以下であり、より好ましくは200ppm以下である。

p m以下であり、より好ましくは100 p p m以下であり、さらに好ましくは50 p p m以下である。

本発明のエポキシ樹脂組成物の全塩素量は実施例の項に記載の方法により規定される。

【0042】

本発明の（B）エポキシ樹脂は本願明細書記載の高溶解性エポキシ樹脂を0.1%以上含むことを特徴とするが、その他のエポキシ樹脂については本発明の目的とする効果を損なわない範囲内において特に制限されない。そのようなエポキシ樹脂の一例を挙げると、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールAD、ビスフェノールS、テトラメチルビスフェノールA、テトラメチルビスフェノールF、テトラメチルビスフェノールAD、テトラメチルビスフェノールS、テトラブロモビスフェノールA、テトラクロロビスフェノールA、テトラフルオロビスフェノールA等のビスフェノール類をグリシジル化したビスフェノール型エポキシ樹脂；ビフェノール、9,9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン等のその他の2価フェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂；1,1,1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、4,4-(1-(4-(1-(4-ヒドロキシフェニル)-1-メチルエチル)フェニル)エチリデン)ビスフェノール等のトリスフェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂；1,1,2,2-テトラキス(4-ヒドロキシフェニル)エタン等のテトラキスフェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂；フェノールノボラック、クレゾールノボラック、ビスフェノールAノボラック、臭素化フェノールノボラック、臭素化ビスフェノールAノボラック等のノボラック類をグリシジル化したノボラック型エポキシ樹脂等；多価フェノール類をグリシジル化したエポキシ樹脂、グリセリンやポリエチレングリコール等の多価アルコールをグリシジル化した脂肪族エーテル型エポキシ樹脂；p-オキシ安息香酸、β-オキシナフトエ酸等のヒドロキシカルボン酸をグリシジル化したエーテルエステル型エポキシ樹脂；フタル酸、テレフタル酸のようなポリカルボン酸をグリシジル化したエステル型エポキシ樹脂；4,4-ジアミノジフェニルメタンやm-アミノフェノール等のアミン化合物のグリシジル化物やトリグリシジルイソシアヌレート等のアミン型エポキシ樹脂等のグリシジル型エポキシ樹脂と、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3',4'-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート等の脂環族エポキサイド等が例示される。但し、高溶解性エポキシ樹脂を除く。

これらエポキシ樹脂は単独で使用しても併用しても良い。

【0043】

本発明のエポキシ樹脂組成物は室温で液状又は25℃での粘度が1000万mPa·s以下のペースト状が好ましい。より好ましくは、25℃での粘度が50万mPa·s以下、更に好ましくは、1000~30万mPa·s、一層好ましくは3000~20万mPa·sである。

粘度が低いほど作業性が高く、容器への付着量を下げて廃棄物の低減が可能であり好ましい。

本発明のエポキシ樹脂組成物は、その機能を低下させない範囲で、その他の成分を含有することができる。その他の成分の含有量は、好ましくは30質量%未満である。

また、本発明に用いられるエポキシ樹脂組成物には、エポキシ樹脂の高分子量体で、自己成膜性を有する一般にフェノキシ樹脂と呼ばれる樹脂をも混合することができる。

本発明のエポキシ樹脂組成物は、一般的なエポキシ樹脂用硬化剤を併用する事ができる。

一般的なエポキシ樹脂用硬化剤としては、酸無水物類、フェノール類、ヒドラジド類およびグアニジン類などが挙げられ、これらは複数を併用することもできる。

【0044】

酸無水物類としては、例えば、無水フタル酸、無水トリメリット酸、無水ピロメリット酸、無水ヘキサヒドロフタル酸、無水テトラヒドロフタル酸、無水-3-クロロフタル酸、無水-4-クロロフタル酸、無水ベンゾフェノンテラカルボン酸、無水コハク酸、無水メチルコハク酸、無水ジメチルコハク酸、無水ジクロールコハク酸、メチルナジック酸

、ドテシルコハク酸、無水クロレンデックク酸、無水マレイン酸等；フェノール類としては、例えば、フェノールノボラック、クレゾールノボラック、ビスフェノールAノボラック等；ヒドラジン類としては、例えば、コハク酸ジヒドラジド、アジピン酸ジヒドラジド、フタル酸ジヒドラジド、イソフタル酸ジヒドラジドテレフタル酸ジヒドラジド、p-オキシ安息香酸ヒドラジド、サリチル酸ヒドラジド、フェニルアミノプロピオン酸ヒドラジド、マレイン酸ジヒドラジド等；グアニジン類としては、例えば、ジシアソジアミド、メチルグアニジン、エチルグアニジン、プロピルグアニジン、ブチルグアニジン、ジメチルグアニジン、トリメチルグアニジン、フェニルグアニジン、ジフェニルグアニジン、トルイルグアニジン等が例示される。

イカルノニン等が例示される。エポキシ樹脂用硬化剤の中で好ましいのは、グアニジン類および酸無水物類である。さらにはジアンジアミド、無水ヘキサヒドロフタル酸、無水メチルテトラヒドロフタル酸、無水メチルナジック酸である。

[0 0 4 5]

エポキシ樹脂硬化剤を使用する場合、エポキシ樹脂（B）100質量部に対して、硬化剤を1~200質量部となる量で用いるのが好ましい。

この範囲で用いる事で硬化性と貯蔵安定性に優れた組成物を与え、耐熱性、耐水性に優れた硬化物を得ることができる。

本硬化剤を用いてエポキシ樹脂組成物を製造する場合には、所望によって、增量剤、補強材、充填材、導電微粒子、顔料、有機溶剤、反応性希釈剤、非反応性希釈剤、樹脂類、カップリング剤等を添加することができる。充填剤の例としては、例えば、コールタール、ガラス繊維、アスベスト繊維、ほう素繊維、炭素繊維、セルロース、ポリエチレン粉、ポリプロピレン粉、石英粉、鉱物性ケイ酸塩、雲母、アスベスト粉、スレート粉、カオリソ、酸化アルミニウム三水和物、水酸化アルミニウム、チヨーク粉、石こう、炭酸カルシウム、三酸化アンチモン、ペントン、シリカ、エアロゾル、リトポン、バライト、二酸化チタン、カーボンブラック、グラファイト、酸化鉄、金、アルミニウム粉、鉄粉等を挙げることができ、これらはいずれもその用途に応じて有効に用いられる。有機溶剤としては、例えば、トルエン、キシレン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、酢酸エチル、酢酸ブチル等が挙げられる。反応性希釈剤としては、例えば、ブチルグリシジルエーテル、N, N' - グリシジル - o - トルイジン、フェニルグリシジルエーテル、スチレンオキサイド、エチレングリコールジグリシジルエーテル、プロピレングリコールジグリシジルエーテル、1, 6 - ヘキサンジオールジグリシジルエーテル等が挙げられる。非反応性希釈剤としては、例えば、ジオクチルフタレート、ジブチルフタレート、ジオクチルアジベート、石油系溶剤等が挙げられる。樹脂類としては、例えば、ポリエステル樹脂、ポリウレタン樹脂、アクリル樹脂、ポリエーテル樹脂、メラミン樹脂やウレタン変性エポキシ樹脂、ゴム変性エポキシ樹脂、アルキッド変性エポキシ樹脂等の変性エポキシ樹脂が挙げられる。

〔0046〕

本発明のエポキシ樹脂組成物は加熱により硬化することで所望の性能が発現されるが、所望により、硬化に関与しない成分を混合して使用することもできる。エポキシ樹脂組成物の内、硬化に関与しない成分としては、例えば、増量剤、補強材、充填材、導電粒子、顔料、有機溶剤、樹脂類等が挙げられるが、これらの成分はエポキシ樹脂組成物全体に対して0～90質量%の範囲で使用されるのが好ましい。

[0047]

本発明のエポキシ樹脂組成物は、接着剤、封止材、充填材料、絶縁材料、導電材料、異方導電材料、シール材料、プリプレグ等として有用である。接着剤としては、液状接着剤やフィルム状接着剤、ダイボンディング材等として有用である。封止材としては、固形封止材や液状封止材、フィルム状封止材等として有用であり、液状封止材としては、アンダーフィル材、ポッティング材、ダム材等として有用である。絶縁材料としては、絶縁接着フィルム、絶縁接着ペースト、ソルダーレジスト等として、導電材料としては導電フィルム、導電ペースト等として、異方導電材料としては、異方導電性フィルム、異方導電性ペ

ースト等として有用である。

[0 0 4 8]

【0048】 導電材料や異方導電材料として用いる場合は、本発明のエポキシ樹脂組成物に導電粒子を分散させて用いられる。導電粒子としては半田粒子、ニッケル粒子、銅と銀の傾斜粒子等の金属粒子や例えば、スチレン樹脂、ウレタン樹脂、メラミン樹脂、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、フェノール樹脂、スチレンーブタジエン樹脂等の樹脂粒子に金、ニッケル、銀、銅、半田などの導電性薄膜で被覆を施した粒子等が使用される。一般に導電粒子は1～20μm程度の球形の微粒子である。フィルムにする場合は、エポキシ樹脂組成物に溶剤を配合し、例えば、ポリエステル、ポリエチレン、ポリイミド、ポリテトラフルオロエチレン等の基材に塗布後溶剤を乾燥させる方法等がある。

絶縁材料や封止材として用いる場合は、本発明の組成物に、シリカ等のフィラーを充填する。フィルムにする場合は、エポキシ樹脂組成物に溶剤を配合し、ポリエチレン等の基材に塗布後溶剤を乾燥させる方法等がある。

【実施例】

[0049]

【0049】本発明を実施例に基づき、更に詳しく説明するが本発明の技術範囲およびその実施態様はこれらに限定されるものではない。実施例及び比較例中の「部」または「%」は特記しない限り質量基準である。

以下に述べる手法により、本実施例および比較例に係る樹脂およびその硬化物の物性評価試験を行った。

(1) エポキシ樹脂組成物からのカプセル型硬化剤の分離

(1) エポキシ樹脂組成物がシリカを含む場合、エポキシ樹脂を用いて、エポキシ樹脂が無くなるまで洗浄と濾過を繰り返す。次に、キシレンが無くなるまでシクロヘキサンで洗浄と濾過を繰り返す。シクロヘキサンを濾別し、50℃以下の温度でシクロヘキサンを完全に除去乾燥する。

(2) エポキシ樹脂組成物からのカプセル膜の分離

(2) エポキシ樹脂組成物を、アミン系硬化剤を無くなるまで洗浄と濾過を繰り返し、50℃以下の温度でメタノールを完全に除去乾燥する。

(3) エポキシ当量

(3) エボイン当量
1 当量のエポキシ基を含むエポキシ樹脂の質量 (g) であり、J I S K-7236に従って求めた。

100501

(4) (B) エポキシ樹脂の全塩素量

(4) (B) エポキシ樹脂の空温系量
エポキシ樹脂組成物を、キシレンを用いて、エポキシ樹脂が無くなるまで洗浄と濾過を繰り返す。次にろ液を100℃以下で減圧留去し、エポキシ樹脂を得る。

繰り返す。次にう液を 100 ml 以下で減圧蒸去し、得られたエポキシ樹脂試料 1~10 g を滴定量が 3~7 ml になるよう精秤し、25 ml のエチレングリコールモノブチルエーテルに溶解し、これに 1 規定 KOH のプロピレングリコール溶液 25 ml を加えて 20 分間煮沸したのち、硝酸銀水溶液で滴定した。

(5) エポキシ樹脂組成物の全塩素量

(3) エポキシ樹脂組成物試料 1~10 g を滴定量が 3~7 mL になるよう精秤し、25 mL のエチレングリコールモノブチルエーテルに溶解し、これに 1 規定 KOH のプロピレングリコール溶液 25 mL を加えて 20 分間煮沸したのち、硝酸銀水溶液で滴定した。

(6) 高溶解性エポキシ樹脂基本構造

エポキシ樹脂組成物を、キシレンを用いて、エポキシ樹脂が無くなるまで洗浄と濾過を繰り返す。次にろ液を100℃以下で減圧留去し、エポキシ樹脂を得る。

得られたエポキシ樹脂を高速液体クロマトグラフィで分析し、分離液をフラクションごとに減圧、留去し残渣をMS、およびNMR、IRで分析し、両末端エポキシ基を含む構造を基本構造とする。

[0051]

(7) ジオール末端不純成分

高溶解性エポキシ樹脂基本構造と同様にして LC 分析チャート上のジオール末端不純成

分分子ピークを同定し、その面積比で高溶解性エポキシ樹脂のジオール末端不純成分の高溶解性エポキシ樹脂基本構造成分に対する面積比率を求める。尚、検出波長を254 nmとした。

(8) 加水分解性塩素量

エポキシ樹脂試料3 gを50 mlのトルエンに溶解し、これに0.1規定KOHのメタノール溶液20 mlを加えて15分間煮沸した後、硝酸銀水溶液で滴定した。

(9) 粘度

25°CでBM型粘度計を使用して測定した。

【0052】

(10) 溶融粘度

東機産業(株)製のRE-550H型粘度計(ローターR-H HH4)を用い、回転数20 rpm、測定温度160°Cの条件で測定した。

(11) FT-IR測定

日本分光(株)社製FT/IR-660Plusを使用し吸光度を測定した。(12)

C13核磁気共鳴スペクトル測定

Brucker社製DSX400(磁場: 400 MHz)で測定した。

(13) ゲルタイム測定

(株) テイ・エスエンジニアリング社製のキュラストメーターV型を使用し、JIS K6300に準拠して求めた。

(14) エポキシ樹脂組成物の貯蔵安定性

エポキシ樹脂組成物に酢酸エチル/トルエン1/1の混合溶媒を不揮発分が70%となる様に混合し、25°Cで1時間静置した。これを乾燥膜厚30 μとなる様に塗布、70°Cで5分加熱乾燥し、組成物中の溶剤を除去し、50°Cで3日貯蔵した。50°C3日間貯蔵前後でFT-IR測定を行い、914 cm⁻¹のピーク高さよりエポキシ基残存率を算出し、貯蔵安定性を評価した。

【0053】

(15) エポキシ樹脂組成物の硬化性

エポキシ樹脂組成物のゲルタイムを測定し、ゲルタイムが5分未満となる温度を測定し、硬化性を評価した。

(16) エポキシ樹脂組成物のエポキシ基反応率

エポキシ樹脂組成物に酢酸エチル/トルエン1/1の混合溶媒を不揮発分が70%となる様に混合し、25°Cで1時間静置した。これを乾燥膜厚30 μとなる様に塗布、70°Cで5分加熱乾燥し、組成物中の溶剤を除去し、200°Cのホットプレート上で30 kg/cm²、20秒間熱圧着を行った。圧着前後でFT-IR測定を行い、914 cm⁻¹のピーク高さよりエポキシ基消失率を算出し、エポキシ基反応率を評価した。

【0054】

[製造例1]

(エポキシ樹脂A)

攪拌装置、温度計を備えた2リットルの三つ口フラスコに、tert-ブチルハイドロキノン166 g(1モル)、エピクロルヒドリン1850 g(20モル)、グリシドール296 g(4モル)、テトラメチルアンモニウムクロライド0.55 gを仕込み、加熱還流下で2時間付加反応させた。次いで内容物を60°Cに冷却し、水分除去装置を装着して1に達した点を反応終了点とした。

その後、減圧ろ過、水洗を繰り返し、さらに減圧蒸留により残存エピクロルヒドリンを回収し粗エポキシ樹脂を得た。

得られた粗エポキシ樹脂を繰返し減圧蒸留にかけ、エポキシ樹脂A(エポキシ当量155、加水分解性塩素含有量25 ppm、全塩素含有量670 ppm、25°Cにおける粘度7

50センチポイズ、ジオール末端不純成分／基本構造成分 = 0.13、架橋間分子量 139. 溶解度パラメーター 8.93)を得た。

【0055】

〔製造例 2〕

(エポキシ樹脂B)

(エポキシ樹脂B)、
tert-ブチルハイドロキノン 166 g (1モル) の代わりにレゾルシン 110 g (1モル) を使用した以外は製造例1と同様に行い、エポキシ樹脂B (エポキシ当量 115、加水分解性塩素含有量 18 ppm、全塩素含有量 600 ppm、25°Cにおける粘度 1.0 センチポイズ、ジオール末端不純成分／基本構造成分ジオール末端／基本構造 = 0.12、架橋間分子量 111、溶解度パラメーター 9.13) を得た。

〔製造例3〕

(エポキシ樹脂C)

反応時にグリシドールを添加しなかった以外は製造例 2 と同様に行い、エポキシ樹脂 C (エポキシ当量 113、加水分解性塩素含有量 30 ppm、全塩素含有量 600 ppm、25°Cにおける粘度 100 センチポイズ、ジオール末端不純成分／基本構造成分 = 0.03、架橋間分子量 111、溶解度パラメーター 9.13) を得た。

[0056]

〔製造例 4〕

(エポキシ樹脂X)

(エポキシ樹脂X)
48.5%水酸化ナトリウムを158g(1.9モル)とした以外は製造例2と同様に
行い、エポキシ樹脂X(エポキシ当量122、加水分解性塩素含有量1000ppm、全
塩素含有量10000ppm、25℃における粘度120センチポイス、ジオール末端不
純成分/基本構造成分=0.10、架橋間分子量111、溶解度パラメーター9.13)
を得た。

合成したエポキシ樹脂A～Xの性状を表2に示した。

[0057]

[實施例 1~3、比較例 1、2]

表3に本発明としての実施例1～3、比較として比較例1～2を示した。仕込み欄の各成分の数字はアミン系硬化剤P100質量部に対する質量部を示す。

表3に記載のエポキシ樹脂1、アミン系硬化剤P、水、MDI(4,4'-ジフェニルメタンジイソシアネート)をノンバブリングニーダーのカップに投入し、室温で3時間攪拌した。更にエポキシ樹脂2を加えエポキシ樹脂組成物を得た。

[審施例 4~6、比較例 3、4]

[実施例4] 3、比較例3、4】
ビスフェノールA型エポキシ樹脂（エポキシ当量2500g／当量）40部を酢酸エチル30部に溶解し、それに、表3に示したエポキシ樹脂組成物1～5の60部と粒径8μmの導電粒子（金メッキを施した架橋ポリスチレン）10部とを加え均一に混合し、エポキシ樹脂組成物を得た。これをポリエステルフィルム上に塗布し、70℃で酢酸エチルを乾燥除去し、異方導電性フィルムを得た。

得られた異方導電性フィルムを電極間に挟み、200℃のホットプレート上で30 kg/cm²、20秒間熱圧着を行った。その結果を表4及び5に示した。

〔0058〕

〔実施例 7〕

[実施例4] ビスフェノールF型エポキシ樹脂（エポキシ当量165g／当量、全塩素量1200ppm、加水分解塩素量400ppm）100部に無水メチルヘキサヒドロフタル酸80部、球状溶融シリカ粉末（平均粒径10μm）300部を加えて均一に混合し、それに表5に示したエポキシ樹脂組成物1～3のいずれか6部を加え均一に混合し、液状封止材を得た。

得られた液状封止材を基板とLSIとの間に挟み、100℃で3時間後更に150℃で3時間加熱した結果、液状封止材は硬化し、封止材として有用であった。本組成物の液状封止材は、絶縁接着ペーストとしても有用であった。

【0059】
【表1】

表1

構造	F i	構造	F i
-CH ₃	147.3	-OH	225.84
-CH ₂ -	131.5	-H (酸性)	-50.47
>CH-	85.99	-OH (芳香環)	170.99
>C<	38.52	-NH ₂	226.56
CH ₂ =	126.54	-NH-	180.03
-CH=	121.53	C≡N	254.56
>C=	84.51	-NCO	358.66
-CH= (芳香環)	117.12	-S-	209.42
-C= (芳香環)	98.12	C ₁ 2	342.67
-O- (イ-テル、アセタ-ル)	114.98	C ₁ 、一級	205.06
-O- (エボキシ)	176.20	C ₁ 、二級	208.27
-COO-	326.58	C ₁ 、芳香環	161.0
>C=O	262.96	B r	257.8
-CHO	292.64	B r、芳香環	205.60
(CO) 20	567.29	F	41.33

【0060】
【表2】

表2

エボキシ樹脂	A	B	C	X
エボキシ当量	155	115	113	122
ジオール末端不純成分	0.13	0.12	0.03	0.10
全塩素量 [ppm]	670	600	600	10000
加水分解性塩素量 [ppm]	25	18	30	1000
溶解度パラメーター	8.93	9.13	9.13	9.13
架橋間分子量	139	111	111	111
粘度 [センチポイズ]	750	110	100	150

【0061】

【表3】

表3

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2
仕込み	アミン系硬化剤 P	100	100	100	100	100
	エポキシ樹脂 1	B F 150				
	水	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	MDI	10	10	10	10	10
	エポキシ樹脂 2	A 50	B 50	C 50	X 50	B A 50
エポキシ樹脂組成物		1	2	3	4	5
エポキシ樹脂組成物全塩素量 [ppm]		700	680	680	2300	630
貯蔵安定性 [%]		70	65	60	65	60
硬化性 [°C]		90	85	98	110	120

B F : ビスフェノールF型液状エポキシ樹脂 (SP : 9.040、架橋間分子量 156、

全塩素量: 300 ppm)

BA : ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂 (SP : 8.895、架橋間分子量 170、

全塩素量: 300 ppm)

アミン系硬化剤 P : 2-エチル-4-メチルイミダゾールエポキシ樹脂付加物、全塩素量
: 1300 ppm)

【0062】

【表4】

表4

	実施例 4	実施例 5	実施例 6	比較例 3	比較例 4
エポキシ樹脂組成物	1	2	3	4	5
電気特性 (抵抗) [Ω]	<1	<1	1.9	5	7
ピール強度 [N/cm]	1.4	1.5	1.0	6	4
エポキシ基反応率 [%]	90	98	78	70	75
耐水性	○	○	○	X	X

○良好、△合格、X不良

【0063】

【表5】

表5

	実施例 4	実施例 5	実施例 6	比較例 3	比較例 4
エポキシ樹脂組成物	1	2	3	4	5
導通性	○	○	△	X	X
耐湿信頼性	○	○	△	X	X

○良好、△合格、X不良

【産業上の利用可能性】

【0064】

本発明によれば、低温硬化性と貯蔵安定性を両立し、更に電気特性、機械的強度、耐熱

出証特 2005-3042305

性、耐湿性等の性能もバランス良く有する硬化物を与えるエポキシ樹脂組成物が得られる。本発明のカプセル型硬化剤を用いたエポキシ樹脂組成物は、接着剤、封止材、充填材、絶縁材料、導電材料、プリプレグ、フィルム状接着剤、異方導電性フィルム、異方導電性絶縁接着フィルム、絶縁接着ペースト、アンダーフィル材、ポッティング材、ペースト、絶縁接着ペースト、ソルダーレジスト等として優れた性能を發揮する。ダイボンディング材、導電ペースト、ソルダーレジスト等として優れた性能を發揮する。

【書類名】要約書

【要約】

【課題】 硬化性、特に低温硬化性と貯蔵安定性を両立し得る一液性エポキシ樹脂組成物、そして、貯蔵安定性が高く、低温あるいは短時間の硬化条件であっても、高い接続信頼性、接着強度、高い封止性が得られる異方導電性材料、導電接着材料、絶縁接着材料、封止材料、構造接着剤等を提供することを目的とする。

【解決手段】 (A) エポキシ樹脂硬化剤からなるコア (a-1) の表面を合成樹脂または無機酸化物からなるシェル (a-2) によって被覆されている構造を持つマイクロカプセル型硬化剤が、マイクロカプセル型硬化剤 100 重量部に対して 10 ~ 50000 重量部の (B) エポキシ樹脂に分散されているエポキシ樹脂組成物において、溶解度パラメータが 8.900 ~ 12.00 であり、硬化後の架橋間分子量が 105 ~ 150 である高溶解性エポキシ樹脂を (B) エポキシ樹脂に対して 0.1 重量% 以上含むことを特徴とし、全塩素量が 2000 ppm 以下であるエポキシ樹脂組成物。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2004-226431
受付番号	50401306652
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成16年 8月 4日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成16年 8月 3日
-------	-------------

特願 2004-226431

出願人履歴情報

識別番号

[303046314]

1. 変更年月日

2003年 8月20日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区有楽町一丁目1番2号

氏 名

旭化成ケミカルズ株式会社